

準大気圧マイクロ波窒素プラズマにおける窒素原子数密度に関する理論的考察
**Theoretical consideration of atomic nitrogen number density
 in near-atmospheric-pressure microwave nitrogen plasma**

加藤進¹, 清水鉄司¹, 榊田創¹
 Susumu Kato¹, Tetsuji Shimizu¹, Hajime Sakakita¹

産総研¹
 AIST¹

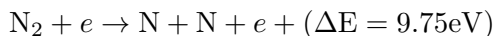
1 はじめに

窒化物半導体である InN や InGaN は、次世代の光デバイスなどとして注目されている。窒化物の有機金属気相成長 (MOCVD) では、一般的にアンモニアガスの熱分解により、窒素系活性種を供給しているが、InN や InGaN の成長は 650 °C 以下の低い温度で行う必要がある。このため、窒素プラズマがアンモニアに変わる窒素系活性種の供給源として提案されている。

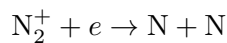
MOCVD 装置に準大気圧で安定的に動作するマイクロストリップ線路を用いたマイクロ波プラズマ源 [1] を導入することにより、高品質の薄膜結晶が生成可能になっている [2]。このとき、窒素ガス流量 2 L min⁻¹, ガス圧 2 kPa, マイクロ波パワー 90W で 5 × 10¹⁴ cm⁻³ 以上の窒素原子密度が達成されている。

2 窒素原子生成過程

窒素原子の生成は、主に窒素分子 (N₂) と電子衝突による解離



と窒素分子イオン (N₂⁺) の解離性再結合

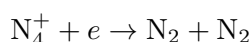


が考えられる。窒素分子イオンの解離性再結合の反応係数 $k_r = 2 \times 10^{-7} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ [3]。電子衝突過程は電子エネルギー分布に強く依存し、放電中で重要な一方、放電後プラズマでは再結合過程が重要となる。

高圧下では、窒素分子イオンはクラスタリング反応 (三体のイオン分子反応)



反応係数 $k_c = 5.5 \times 10^{-29} \text{ cm}^6\text{s}^{-1}$ [4] が効果的となり、解離性再結合



反応係数 $2.6 \times 10^{-6} \text{ cm}^3\text{s}^{-1}$ [5] により消滅する。

放電後プラズマにおける窒素原子生成は、

$$\begin{aligned} \frac{d[\text{N}]}{dt} &= k_r [e][\text{N}_2^+] \\ \frac{d[\text{N}_2^+]}{dt} &= -k_r [e][\text{N}_2^+] - k_c [\text{N}_2^+][\text{N}_2]^2 \end{aligned}$$

で、簡易には評価できる。

ガス圧 2 kPa の場合、クラスタリング反応による窒素分子イオンの消滅レートは大凡 $2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, 初期にプラズマ密度 $[e] = [\text{N}_2^+] = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ が生成された場合、窒素分子イオンの約 30% が窒素原子の生成に寄与する。一方、ガス圧 20kPa の場合、窒素分子イオンの約 0.5%, すなわち窒素原子の生成量は 10^{12} cm^{-3} 程度になる。

発表では、放電によるプラズマ生成過程も含め、詳細な Kinetic モデルを用いて、圧力・放電電界強度と電子密度、窒素原子密度などの関係について報告する予定である。

References

- [1] J. Kim, M. Katsurai, D. Kim, and H. Ohsaki, Appl. Phys. Lett., **93**,191505 (2008).
- [2] H. Sakakita, N. Kumagai, T. Shimizu, J. Kim, H. Yamada, and X. lun Wang, Appl. Mater. Today **27**, 101489 (2022).
- [3] M. Geoghegan, N. G. Adams, and D. Smith, J. Phys B **24**, 2589 (1991).
- [4] P. A. M. van Koppen, M. F. Jarrold, M. T. Bowers, L. M. Bass, and K. R. Jennings, J. Chem. Phys. **81**, 288 (1984).
- [5] Y. S. Cao and R. Johnsen, J. Chem. Phys. **95**, 7356 (1991).